

文章编号: 0258-7025(2004)02-0223-06

独立模式算法求解颗粒粒径分布的研究

徐 峰, 蔡小舒, 苏明旭, 赵志军, 李俊峰

(上海理工大学颗粒与两相流测量技术研究所, 上海 200093)

摘要 光散射法测粒技术中常常会碰到反问题(inverse problem), 即对多分散的颗粒两相介质, 通过测得的多个角度或不同波长下的光信号, 求解第一类 Fredholm 积分方程。从理论和实验两方面出发, 改进了 Twomey 算法在前向散射和消光法测粒技术中的应用, 获得合理的颗粒粒径分布结果。

关键词 应用光学; 光散射; 颗粒测量; 反演算法; 独立模式

中图分类号 TH 744 **文献标识码** A

Study of Independent Model Algorithm for Determination of Particle Size Distribution

XU Feng, CAI Xiao-shu, SU Ming-xu, ZHAO Zhi-jun, LI Jun-feng

(Institute of Particle and Two Phase Flow Measurement Technology,
University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract Inverse problem is always encountered in particle sizing techniques based on the light or acoustic scattering. Here, through numerical simulation and experimental validation, the Twomey algorithm applied in the foregoing measuring methods was improved and the reasonable results of particle size distribution were got. As a result, the Philip-Twomey-NNLS algorithm combined with generalized cross validation (GCV) technique is proved effective to handle the inverse problem in particle sizing.

Key words applied optics; light scattering; particle sizing; inverse algorithm; independent model

1 引 言

衍射或前向光散射法是通过测量颗粒系在前向不同角度范围内的衍射或散射光强大小获得粒径分布的, 消光法则是通过测量多个波长下透射光强度的大小获得粒径分布的。在这两种测量方法的数据处理中都会遇到求解第一类 Fredholm 积分方程的问题。目前对此类方程还没有理论解, 因而必须采用其他方法。已有的反演算法可以分为分布函数算法和无分布函数算法两类, 两者又分别称为非独立模式算法(independent model algorithm)和独立模式算法(dependent model algorithm)。

非独立模式算法基于这样一个假设: 被测颗粒

系的颗粒尺寸分布满足某个已知的分布函数(如 R-R 分布和正态分布等), 通过一定的优化方法确定分布函数中的待定参数。由于目前大多数分布函数都是双参数分布, 所以非独立模式反演本质上就是 2 个参数的最优求解过程^[1,2]。

事实上, 在绝大多数实际应用中, 往往不知道被测颗粒系的粒径分布规律, 或者颗粒系的尺寸分布无法简单地用某个分布来描述, 这就使非独立模式求得的结果变得不可靠。目前国内外大都采用独立模式算法确定颗粒的尺寸分布。所谓独立模式的算法, 就是不事先假定被测颗粒系的分布形式, 而是根据实际测量结果直接求解第一类 Fredholm 积分方程。在已经提出的独立模式算法中, Philip-

收稿日期: 2002-09-29; 收到修改稿日期: 2002-12-12

基金项目: 国家自然科学基金(编号: 50176033)资助项目。

作者简介: 徐 峰(1979—), 男, 上海理工大学动力机械及工程专业硕士研究生, 主要研究方向为颗粒测量技术。E-mail:

Twomey-NNLS 算法应用最广,但还存在一些问题,本文主要探讨的是该算法的改进及在前向散射和多波长消光法测粒技术中的应用。

2 问题的提出

2.1 衍射及前向散射测粒技术中的反演问题

对于前向散射^[3,4],在同轴采光^[5]的情况(图 1)下,光通量可由下式计算得到

$$F = \frac{\lambda^2 I_0}{4\pi} \int_{\theta_1}^{\theta_2} [i_1(\theta, d, \lambda, m) + i_2(\theta, d, \lambda, m)] \sin\theta d\theta \quad (1)$$

式中, I_0 为入射光强度, i_1 和 i_2 为包含粒径信息的散射强度函数^[6]。

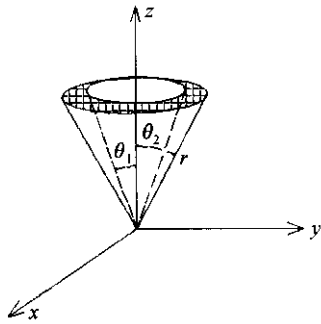


图 1 同轴采光示意图
Fig. 1 Light coaxial collecting model

在散射或前向小角散射中,散射光通常由数十个不同大小的同心圆环组成的光电探测元件(光靶)测得。光靶直径及环数与颗粒测量范围有关。于是得到如下方程组

$$\begin{aligned} e_1 &= t_{1,1}v_1 + t_{2,1}v_2 + \dots + t_{n,1}v_n \\ e_2 &= t_{1,2}v_1 + t_{2,2}v_2 + \dots + t_{n,2}v_n \\ &\vdots \\ e_m &= t_{1,m}v_1 + t_{2,m}v_2 + \dots + t_{n,m}v_n \end{aligned} \quad (2)$$

式中 m 为环数, n 为粒径分档数,每一个系数 $t_{i,j}$ 按式(1)计算得到,其意义为:不同粒径段的等效平均值 D_i 的颗粒落在第 j 环上的散射光能。以上线性方程组表示成矩阵形式就是

$$E = TV \quad (3)$$

其中 $E = (e_1, e_2, \dots, e_m)^T$ 称为光能分布列向量;而 $V = (v_1, v_2, \dots, v_n)^T$ 称为尺寸分布列向量。这里将系数矩阵写为

$$T = \begin{bmatrix} t_{1,1} & t_{2,1} & \dots & t_{n,1} \\ t_{1,2} & t_{2,2} & \dots & t_{n,2} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ t_{1,m} & t_{2,m} & \dots & t_{n,m} \end{bmatrix}_{m \times n}$$

当系数矩阵 T 求得后,问题转化为如何从所得的光能分布列向量 E 来求解线性方程组(3),以获得被测颗粒的理论分布 V 。

2.2 多波长消光法测粒技术中的反演问题

在多波长消光法测量中^[7],对于具有一定尺寸范围的多分散颗粒系有

$$\ln(I/I_0)_j = -\frac{\pi}{4} L \int_a^b N(D) D^2 K_{\text{ext}(j)} dD \quad (4)$$

式中, a 和 b 分别为颗粒分布尺寸的上下限, $N(D)$ 为颗粒数目频度分布或颗粒数目分布, j 为波长数。

用数值积分的方法将(4)式离散,同样可以得到一矩阵表示的线性方程组

$$E = TN \quad (5)$$

其中, $T_{j,i} = D_i^2 K_{\text{ext}}(\lambda_j, m, D_i)$, D_i 为各分档的等效粒径, K_{ext} 为消光系数,由颗粒折射率、粒径及入射光波长决定。可见,两种光散射测粒方法最终都得到如下形式的线性方程组

$$E = TW \quad (6)$$

这样,反演问题归结为式(6)的求解。

从数学上讲,如果系数矩阵 T 满秩,被测颗粒的列向量 W 可由下式计算得到

$$W = T^{-1}E \quad (7)$$

但由于方程组(7)高度病态,条件数非常大,因而无法采用通常的算法进行求解。

3 Phillips-Twomey-NNLS 算法的应用和分析

3.1 粒径分布的求解

非负最小二乘法(NNLS 解法)是最早采用的一种算法。但 Twomey^[8]认为按此方法算出的结果,受向量 E 的误差影响较大,而这种误差在测量中难以避免,所以常得不到理想的解,为此他引入光顺因子 γ 和光顺矩阵 H ,将式(6)改写为

$$(TT' + \gamma H)W = T'E \quad (8)$$

再用非负最小二乘法求解,即

$$\begin{cases} \|(TT' + \gamma H)W - T'E\| = \min \\ W \geq 0 \end{cases} \quad (9)$$

T' 为系数矩阵的转置, $W \geq 0$ 表示对体积分布或者数目分布列向量的所有分量,有 $W_i \geq 0, i = 1, 2, \dots, n$ 。

应用上述算法,对用前向散射法测量国家标准颗粒 GBW120001~120006 的测量数据进行反演,得到的体积累积频度分布如图 2 所示,体积平均直径如表 1 所示。

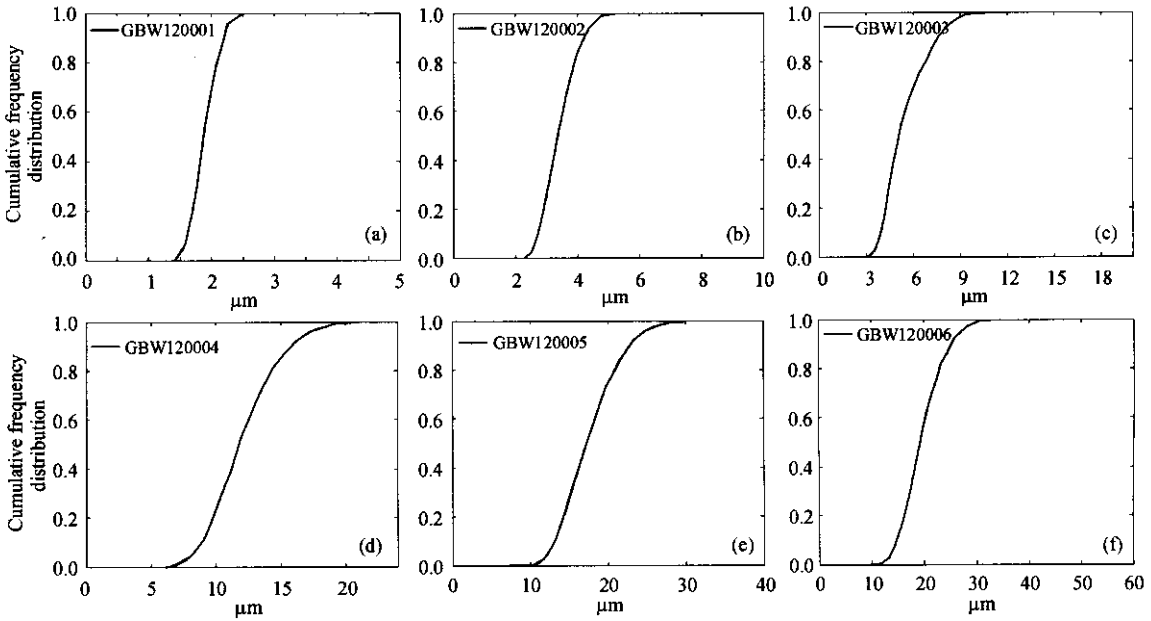


图 2 GBW120001~120006 标准颗粒反演结果

Fig. 2 Inverse results of standard reference particles (GBW120001~120006) measurement

表 1 Twomey 算法反演结果

Table 1 Inverse results of volume mean diameter (VMD) by Twomey algorithm

Sample number	GBW120001	GBW120002	GBW120003	GBW120004	GBW120005	GBW120006
VMD on label / μm	2.08	3.36	5.06	10.14	16.64	21.05
Inverse results / μm	1.93	3.4	5.2	11.5	17.01	19.01
Error /%	7.2	1.2	2.77	13.4	2.22	9.69

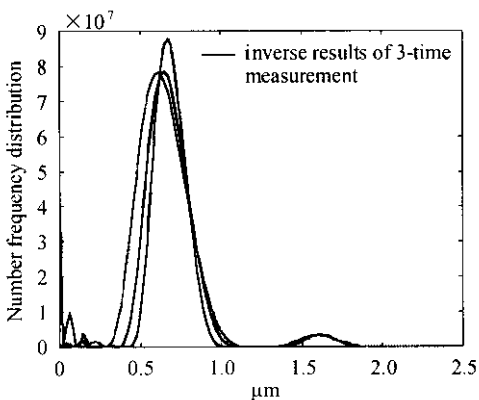


图 3 Twomey 算法反演结果

Fig. 3 Inverse results by Twomey algorithm
(data from light extinction measurement)

图 3 是消光法对某一颗粒悬浊液测量 3 次后所得数据进行反演得到的数目分布结果。由图可见,反演效果令人满意。

3.2 光顺因子 γ 的选取

在前面的数值模拟中,回避了 Twomey 算法中

一个最重要的问题:光顺因子 γ 的选取。事实上,光顺因子 γ 对于线性方程的解影响很大, $\gamma = 0$,式(8)退化为一般的求逆矩阵算法,由此得到的解呈剧烈振荡形。逐渐增大 γ 值,解的振荡减少,逐渐变得光顺,分布变宽。 γ 值过大,则分布过于光顺,仍会造成误差。

因此,在计算过程中,如何选取 γ 值一直颇受人们关注^[7~10],我们采用的是 GCV 技术 (generalized cross validation technique)^[11]。经过一系列的推导, γ 的选定可以归结为对下列关于 γ 的函数求最小值

$$U(\gamma) = m \frac{|[I - T(TT' + \gamma H)^{-1}T']E|^2}{\text{Trace}([I - T(TT' + \gamma H)^{-1}T'])}$$

(10)

式中, I 为单位矩阵, m 为矩阵的阶数,也等于单位矩阵的阶数,符号 $||$ 是求范数,符号 Trace 是求矩阵的迹。由于 γ 本身的值可能很大,为研究方便,对该参数正则化,即按照 $U(\gamma)/[U(\gamma) + 1]$ 计算,将函数值约束在 0 和 1 之间。这种处理并不会改变函数本

身的变化规律。绝大多数情况下的计算表明,函数 $U(\gamma)/[U(\gamma)+1]$ 总是符合图 4 所示变化规律,运用一维搜索容易找到最优 γ 值。

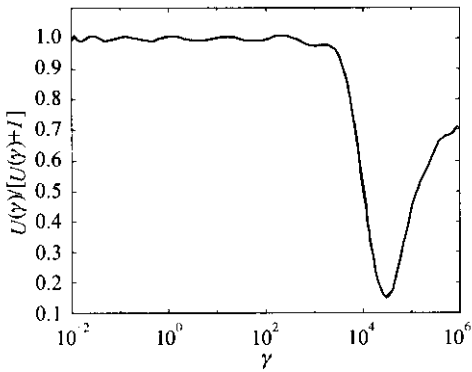


图 4 确定最优 γ 的 $U(\gamma)/[U(\gamma)+1]$ 曲线

Fig. 4 Curve of function $U(\gamma)/[U(\gamma)+1]$ for determination of optimum parameter γ

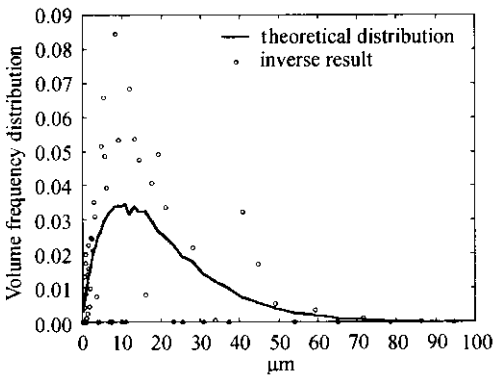


图 5 $\gamma = 0.1$ 的反演结果

Fig. 5 Inverse results of $\gamma = 0.1$

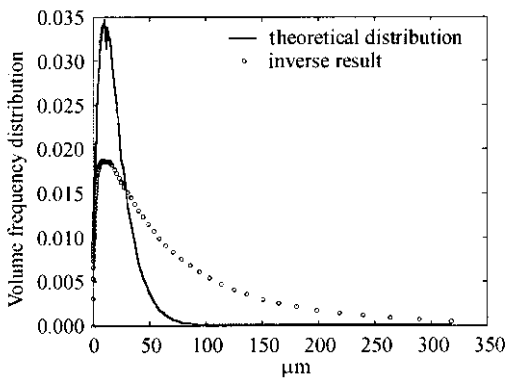


图 6 $\gamma = 10000$ 的反演结果

Fig. 6 Inverse results of $\gamma = 10000$

运用数值模拟,假定 $\bar{D} = 10 \mu\text{m}$, $k = 1$ 的 R-R 分布颗粒系,先计算理论光能分布,给理论光能分布的每个数据随机地加上 2%~4% 的误差后作为测量数据,再用反演算法进行反演,结果如图 5~

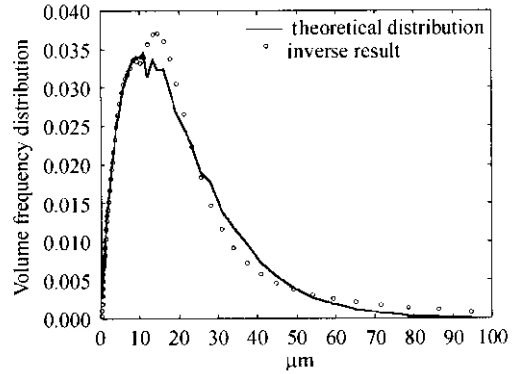


图 7 GCV 技术 ($\gamma = 100$) 的反演结果

Fig. 7 Inverse results by GCV technique ($\gamma = 100$)

7 所示。其中图 7 的 γ 值由 GCV 技术确定。

值得一提的是,在少数情况下,会出现“瓶底”现象,就是存在一系列大小相同的最小值对应不同的 γ 值,或者 $U(\gamma)/[U(\gamma)+1]$ 曲线本身振荡。对于前一种情况, γ 值的选取可以通过对系列最优 γ 求平均来确定;对于后一种情况,可以通过对 $U(\gamma)$ 曲线进行多项式拟合,最终得到图 4 所示的曲线,从而求得最佳 γ 值。

必须指出,在颗粒测量中,至今还没有一种适用于任何情况的反演方法,任何算法或者寻优方法都有各自的适用范围和局限性。

3.3 双峰、多峰分布的反演

对双峰分布进行数值模拟时,设定分布由两种 R-R 分布的颗粒系 ($\bar{D}_1 = 10 \mu\text{m}$, $k_1 = 8$; $\bar{D}_2 = 50 \mu\text{m}$, $k_2 = 20$) 按 1:1 的重量比混合而成,反演时同样给理论光能分布加上 2%~4% 的随机误差,反演的结果同设定分布的比较如图 8 所示;对三峰分布进行数值模拟时,设定分布由 3 种 R-R 分布的颗粒系 ($\bar{D}_1 = 5 \mu\text{m}$, $k_1 = 6$; $\bar{D}_2 = 20 \mu\text{m}$, $k_2 = 5$; $\bar{D}_3 =$

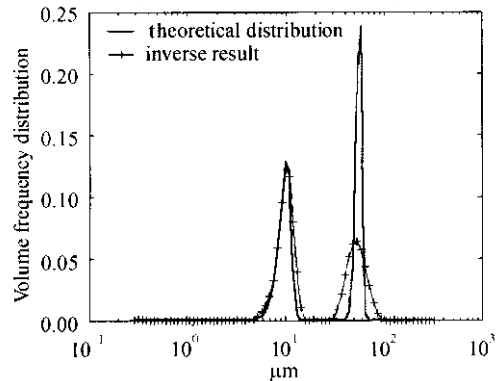


图 8 双峰反演结果

Fig. 8 Inverse results of 2-model distribution

80 μm , $k_3 = 2$)按 1:3:1混合,反演结果同设定分布的比较如图 9 所示。此外,为了考证该算法的分辨率,设定两种 R-R 分布的颗粒系 ($\bar{D}_1 = 1 \mu\text{m}$, $k_1 = 8$; $\bar{D}_2 = 2 \mu\text{m}$, $k_2 = 10$)按 1:1混合,反演结果如图 10 所示。

通常情况下,非独立模式算法(如限定 R-R 分布)难以得到双峰分布结果;而由图 8~10 可见,改进的 Twomey 算法对双峰乃至三峰分布的颗粒都可以给出很好的结果,甚至对相距 $1 \mu\text{m}$ 的颗粒都能很好地分辨,这就是独立模式算法的优势所在。

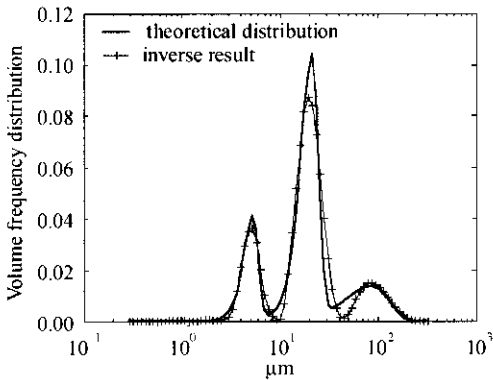


图 9 三峰分布反演结果

Fig. 9 Inverse results of 3-model distribution

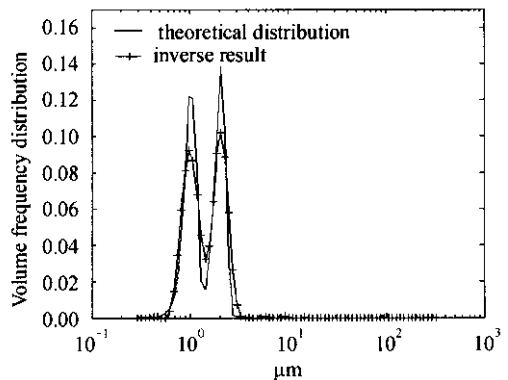


图 10 分辨率效果

Fig. 10 Demonstration of discrimination

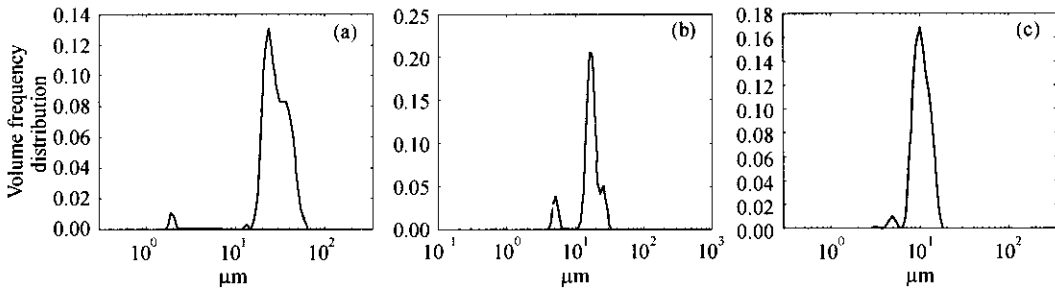


图 11 混合颗粒的反演结果

Fig. 11 Inverse results of mixed particles

(a) GBW120001+GBW120009; (b) GBW120003+GBW120005; (c) GBW120002+GBW120004

3.4 测量误差的影响

实际测量过程中,不可避免会引入测量误差,通过数值模拟,可以估计误差对反演结果的影响。

对特征尺寸为 $50 \mu\text{m}$,分布参数为 4 的颗粒系进行数值模拟,图 12 和图 13 为在理论光能分布数据加上不同随机误差后与无误差反演的比较。理论分布的 D_{32} 为 $42.7 \mu\text{m}$,无误差反演得到的 D_{32} 为 $42.8 \mu\text{m}$;2%随机误差得到的 D_{32} 为 $42.6 \mu\text{m}$;5%随机误差反演得到的 D_{32} 为 $42.3 \mu\text{m}$ 。显然增加误差会使计算结果的准确性受到一定的影响,但由于 Twomey 算法引入的光顺矩阵和光顺因子的作用,

当然,其计算结果略显不足,主要表现在:分布区间变宽,反演结果的曲线与理论分布曲线峰值大小略有不同;某些情况下,在无颗粒区间可能会“无中生有”出非零解。这些缺陷的产生与第一类 Fredholm 积分的“核函数”的性质密切相关。

图 11(a)~(c)是对某激光测粒仪测量混合颗粒系后的实验数据进行反演的结果,其体积平均直径计算结果分别为 $7.15 \mu\text{m}$, $10.41 \mu\text{m}$, $9.29 \mu\text{m}$ 。实验也表明,该算法可以分辨双峰分布。

使反演结果有很好的稳定性。

4 结 论

本文利用 GCV 技术,用最优化方法确定 Philip-Twomey-NNLS 算法中光顺因子 γ , 改善了 Philip-Twomey-NNLS 算法的性能,对双峰和 3 峰分布的颗粒都能得到很好的结果,并且有较高的分辨率,同时解有很好的稳定性,在测量误差达 5% 时仍可得到满意的结果。

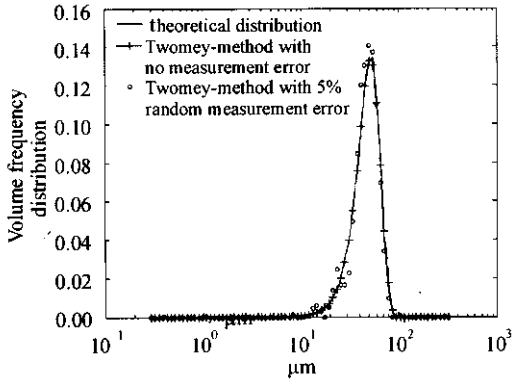


图 12 无误差和 5% 随机误差的反演结果

Fig. 12 Inverse results with no error and with 5% random measurement error

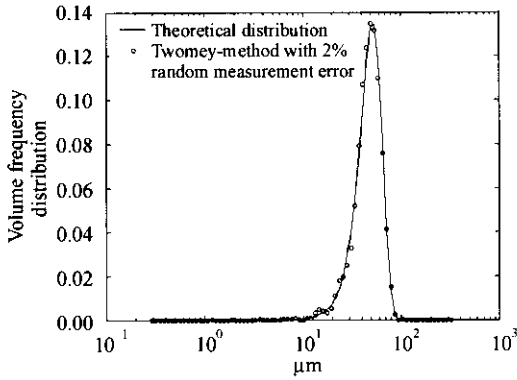


图 13 2% 随机误差的反演结果

Fig. 13 Inverse results with 2% random measurement error

参 考 文 献

1 Chen Baolin. Optimization Theory and Algorithm [M]. Beijing: Tsinghua University Press, 1989. 49~66, 420~432

- 陈宝林. 最优化理论与算法[M]. 北京: 清华大学出版社, 1989. 49~66, 420~432
- 2 Zheng Gang, Wang Naining, Sun Hao *et al.*. Determination of the particle size distribution by Powell's optimization theory [J]. *Journal of Shanghai Institute of Mechanical Engineering*, 1993, **15**(1):27~31
- 郑刚, 王乃宁, 孙浩等. 用 Powell 法求解颗粒尺寸分布 [J]. *上海机械学院学报*, 1993, **15**(1):27~31
- 3 H. C. van de Hulst. Light Scattering by Small Particles [M]. New York: Dover Publications Inc., 1981. 103~111
- 4 M. Kerker. The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation [M]. New York: Academic Press, 1969. 31~54
- 5 Wang Jianhua, Xu Guandong, Wang Naining. Mathematical model of calculating the flux of laser scattering by single particle in arbitrary directions [J]. *Applied Laser*, 1995, **15**(2):79~80
- 王建华, 徐冠东, 王乃宁. 单个颗粒激光散射在任意方向上的光通量计算模型 [J]. *应用激光*, 1995, **15**(2):79~80
- 6 Gu Guanliang, Wang Naining. The method of numerical calculation of different physical quantities about scattering by small particles [J]. *Journal of Shanghai Institute of Mechanical Engineering*, 1984, **6**(4):21~32
- 顾冠亮, 王乃宁. 微小颗粒光散射的有关物理量的计算 [J]. *上海机械学院学报*, 1984, **6**(4):21~32
- 7 Cai Xiaoshu. Research of particle size measurement technology based on light extinction method and its application in wet steam measurement [D]. *Shanghai Institute of Mechanical Engineering*, 1991
- 蔡小舒. 光全散射测粒技术及在湿蒸气测量中应用的研究 [D]. *上海机械学院*, 1991
- 8 S. Twomey. Introduction to the Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Indirect Measurement [M]. New York: Dover Publications Inc., 1977. 115~149
- 9 Charles L. Lawson, Richard J. Hanson. Solving Least Squares Problems [M]. New Jersey: Prentice-Hall Inc., 1974. 158~169
- 10 Gregory R. Markowski. Improving Twomey's algorithm for inversion of aerosol measurement data [J]. *Aerosol Science and Technology*, 1987, **7**:127~141
- 11 A. Brandolin, L. H. Garcia-Rubio, Theodore Provder *et al.*. Latex particle size distribution from turbidimetry using inversion techniques [C]. *ACS Symposium Series*, 1990, **472**: 21~33